

PAT-NO: JP402155170A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 02155170 A

TITLE: FUEL CELL PERFORMING INTERNAL REFORMATION

PUBN-DATE: June 14, 1990

INVENTOR-INFORMATION:

NAME **COUNTRY**

FUJIMURA, HIDEKAZU

ITO, SHOJI

KOBAYASHI, SHIGEYOSHI

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME **COUNTRY**

HITACHI LTD N/A

APPL-NO: JP63308745

APPL-DATE: December 8, 1988

INT-CL (IPC): H01M008/02 , H01M008/06

ABSTRACT:

PURPOSE: To make a fuel cell compact and to prevent deterioration in the activity of a reforming catalyst caused by an electrolyte by forming passages having different inlets and outlets and passing different fluids.

CONSTITUTION: Corrugated members 1a, 1b perpendicularly intersect though a separating plate 2 to form four passages 3a-3d. Of two kinds of passages 3a-3d formed between the gas separating plate 2 and electrodes, the passages 3a, 3d reform supplied fuel gas, and have different inlets and outlets from the passages 3b, 3c opened toward electrodes in communication with an electrolyte. Penetration of electrolyte vapor from the passages 3b, 3c to the passages 3a, 3d can be prevented. Catalysts in the passages 3a, 3d separated from electrodes can be prevented from deterioration in activity for a long time.

COPYRIGHT: (C)1990, JPO&Japio

⑫公開特許公報(A) 平2-155170

⑬Int. CL⁵H 01 M 8/02
8/06

識別記号

庁内整理番号

R 7623-5H
C 7623-5H
R 7623-5H

⑭公開 平成2年(1990)6月14日

審査請求 未請求 請求項の数 10 (全11頁)

⑤発明の名称 内部改質を行う燃料電池

⑥特願 昭63-308745

⑦出願 昭63(1988)12月8日

⑧発明者	藤村秀和	茨城県土浦市神立町502番地	株式会社日立製作所機械研究所内
⑨発明者	伊藤昌治	茨城県土浦市神立町502番地	株式会社日立製作所機械研究所内
⑩発明者	小林成嘉	茨城県土浦市神立町502番地	株式会社日立製作所機械研究所内
⑪出願人	株式会社日立製作所	東京都千代田区神田駿河台4丁目6番地	
⑫代理人	弁理士 平木祐輔	外1名	

明細書

1. 発明の名称

内部改質を行う燃料電池

2. 特許請求の範囲

1. 電極、電解質、ガス流路を含む燃料電池において、ガス分離板をはさんで両側に該ガス分離板と対峙するそれぞれの電極を配設し、該電極とガス分離板との間に、該電極と接し、該電極において電気化学反応を生じる第1の流体通路を前記分離板の両側にそれぞれ配設し、該電極と隔離され、しかも該電極の熱発生面と熱的に連絡している第2の流体通路を該ガス分離板の両側にそれぞれ配設し、該第1の流体通路と該第2の流体通路が隔壁を介して相互に接し、かつ該第1の流体通路と該第2の流体通路へのガスの導入部が異なることを特徴とする燃料電池。
2. 第2の流体通路の両端出入口部が、隣接する第1の流体通路の両端の出入口部と連絡できないように閉塞されていることを特徴とする請求項1記載の燃料電池。

3. ガス分離板と該シート材によって形成される分離板に対して開いている第2の流体通路の閉塞された両端部近傍のガス分離板面上に、貫通する開口部を設け、該開口部と流体的に連絡する第2の流体通路の出入口部を、該ガス分離板介して該流体通路と反対側に設けた請求項2記載の燃料電池。

4. 電池内にガスの給排を行うガスマニホールドと第2の流体通路の出入口部を含み、流体的に該第2の流体通路とのみ開口部を通して連絡する通路あるいはガスヘッダーを該第2の流体通路の反対側の該分離板上に設けられたことを特徴とする請求項3記載の燃料電池。

5. 電解質、ガス拡散電極により電気化学反応を行わすために該拡散電極には、電気化学的に活性なガスを流し、該電極と流体的に隔離され、熱発生面とは熱的に連絡されている流路に電気化学的に不活性あるいは、該電極を流れるガスとは異なるガスを流し、そのガスの供給源を別個に有する燃料電池システム。

6. 電極と流体的に隔離された通路に、電池の保温、昇温、冷却操作において電池の温度を制御するための加熱媒体あるいは冷却媒体を電池に反応ガスとは独立して供給する請求項5記載の燃料電池システム。
7. 燃料電池内の電解質と該電解質と電極を介して流体的に連絡する該電池の流体通路へ、ガス供給源から供給される炭化水素含有ガスを導入して電気化学反応を生じさせ電気エネルギーを発生する燃料電池において、該電極と隔壁を介して位置し、かつ電極の熱発生面と熱的に連絡している別な第2の流体通路を設け、該電極と連絡する第1の流体通路へ供給するガスと、電極と隔離されている前記第2の流体通路へ供給するガスが、異なる位置から別々に混合されることなく導入されることを特徴とする燃料電池の運転操作方法。
8. ガス分離板を介して両側に位置する第2の流体通路のうちの片方あるいは両方に炭化水素を含有するガスを流し、該ガスを触媒を用い電気

することができる燃料電池、該燃料電池システム、および該燃料電池の運転操作方法に関する。

〔従来の技術〕

リン酸電池および溶融炭酸塩電池のような燃料電池において、燃料供給ガスの炭化水素分を内部で改質することは既知である。このような炭化水素分は通常、比較的電気化学的に不活性なメタンを含有しているが、改質されることにより、電気化学的に活性で燃料電池の反応に寄与する水素、一酸化炭素を生成する。燃料電池内での改質は、改質反応が吸熱反応であるため、運転中に電池内で発生する熱を利用してできる点で有利である。すなわち、内部改質によって、燃料電池の冷却系統の負荷を軽減することができるからである。

特開昭55-12700号公報には、燃料電池の熱制御に炭化水素の改質反応の使用が記載されている。電池中の電解質から隔離された通路内に改質触媒を配置させることにより、電解質の蒸気による触媒劣化を防止させるとともに、改質反応とプロセスガスの顯熱を同時に利用した熱制御を行うもの

化学的に活性なガスに改質する吸熱リフォーミング過程を導入することを特徴とする請求項7記載の燃料電池の運転操作方法。

9. ガス供給源から供給される炭化水素を含有するガスを最初に第2の流体通路に通し改質せながら該流体通路の出口に達せしめ、その後に該改質ガスを該改質ガスと電気化学反応を生じる電極側に位置する第1の流体通路入口に通せしめることを特徴とする請求項8記載の燃料電池の運転操作方法。
10. 炭化水素含有ガスが流れる第2の流体通路と改質されたガスが流れる第1の流体通路を流れるガスとの向きを互いに対向するようにしたことを特徴とする請求項9記載の燃料電池の運転操作方法。

3. 発明の詳細な説明

〔産業上の利用分野〕

本発明は、反応ガスまたは、反応生成ガスを電池に導入、排出される燃料電池に関わり、特に、燃料電池供給ガス用炭化水素分をその内部で改質

である。

〔発明が解決しようとする課題〕

上記従来技術は、電解質から隔離された炭化水素の改質のみを行う第1の通路と、それと並置されたいわゆる従来から存在する電極へガスを供給する第2の通路のそれぞれの入口には共通のガスが供給される電池構造となっている。すなわち第1の通路と第2の通路のガス供給源が共通している。このため、燃料供給ガス中に含まれる炭化水素分は、第1の通路を通った場合のみ改質されて排出されるが、電気化学反応には寄与しない。第2の通路に入ったガスの炭化水素分は改質されないため、電気化学反応に寄与する水素などのガスの分圧は極めて低くなり、性能が低くなる点についての考慮がなされていない。このため電池から排出された第1の通路と第2の通路のガスを混合して再循環させる方式をとらざるを得なくなり、システム上、大きな制約を受けるとともに再循環系に対して補助動力源が付加されることになりシステムの効率を考えた場合好ましくない。また、

たとえ再循環方式をとっても、電池入口では常に新しい炭化水素を含む燃料供給ガスと混和されているため、その分だけ水素などの電気化学反応に寄与する反応種の分圧低下による電池性能の低下は避けられない。

また前記公報には電池を直列にして使用する際のカスケード方式が記載されているが、これは先行電池中の炭化水素改質ガスを後続電池の反応通路に供給して電気化学反応を起こす方法であるが、先行電池と後続電池とでは、ガス流量、ガス組成、ガス温度などの条件を等しくすることは困難であり、各電池間で性能差や電池温度差が発生することは避けられない。

すなわち従来技術では、単電池ごとに燃料供給ガスを改質し、その改質ガスを用いて発電する方式あるいは構造にはなっておらず、電気化学反応に寄与する改質ガスは、再循環によって得るか、あるいは先行電池から得る以外になく、それに伴う欠点は前述の通りである。

さらに上記従来技術においては、コンパクト性

及び熱制御面から電解質から隔離された通路と反応通路とが隣接して交互に並べられるが、それぞれの通路の両端部は開口されており、電解質から隔離された通路とはいえ、反応通路内の電解質蒸気が拡散により、隣り合う両通路の端部の開口部を通して流入することは避けられない。従って電解質から隔離された通路内に配置された改質触媒が隣接する通路からの電解質により劣化し、寿命を考えた場合、問題が残る。

本発明の目的は、コンパクトで、電解質による改質触媒の活性低下を防止し、単電池内で、供給燃料ガスの改質とその改質ガスを用いて電気化学反応による発電を行う燃料電池を提供することにある。

本発明のもう1つの目的は、改質反応の吸熱作用とプロセスガスの顯熱を利用し、高性能な熱制御や温度分布均一化を行うことである。

(課題を解決するための手段)

上記目的は、アノードガス、カソードガスを仕切るガス分離板をはさんで、それぞれの電極との

間に形成されるガス流路を形成する空間部において、従来と同様の電極と流体的に連絡して電気化学反応を行う流路とそれとは別に、電極と流体的に隔離された通路を形成させ、その隔離された通路内に原燃料であるメタンの改質を行う改質触媒を配置するとともにその通路の出入口が、電極と直接接する通路と流体的に隔離された位置に設け、また、流路にガスを導くためのマニホールドも、他のガスと混同しないように独立して設けることにより達成される。さらに、電極と隔離された通路内で改質されたガスだけが電極と直接接する通路に導入されることにより達成される。

出入口を異にする流体的に隔離された通路を形成するため、集電のために必要不可欠な分離板と電極との接触を図るために分離板と電極間に組入れられる波形、あるいは凹凸シート板の表裏を利⽤し、分離板とシート材によって形成される、電極と直接接しない流路の両端部を閉塞させ、もう一方の電極とシート材によって形成される流路の両端部に設けられる出入口部との流体的な連絡を

遮断することによって達成される。さらに、両端を閉塞された、電極と隔離された通路の出入口部を、分離板をはさんで、反対側に設けるとともに、通路両端近傍の分離板に貫通孔を設け、この開口部を通じて、分離板の反対側から通路へのガスの供給や、ガスの排気を行うものである。従って、各セルへガスを供給するためのマニホールドと上記出入口部とを連絡する通路が、分離板上に形成され、マニホールドから供給されるガスはその通路を通って入口部に入り、そこから分離板に空けられた開口部を通して分離板の反対側に位置する電極と隔離され、両端を閉塞された通路に導入される、通路からの排気も同様に開口部を通じて出口部に導入され、出口マニホールドに連絡することによって行われる。また、出入口部として、分離板をはさんで反対側に位置するもう一方の両端が閉塞され、電極と隔離された通路のうち、最も外側に位置する2つの両端の通路をそれぞれマニホールドと、分離板に設けた開口部を連絡する出入口部とすることにより達成される。

また、電池の温度分布の均一化を図るために冷却用ガスを1方向からではなく、複数の方向からの分散供給や、電池内の高熱部に吸熱反応である改質反応を集中的に行わせるようなガス流れを実現することにより達成される。具体的には、上記の流路構造により、カソード、アノードガスまたそれ以外の2種類のガスを、同一辺に最大2種類までの流体を、4辺の任意の辺から流すことが可能であることを考えれば、上記の様なガス流れを実現することは充分に可能である。

また、電池の効率的な熱制御を行うためには、電気ヒーター以外のガスによる加熱手段あるいは保溫方法を有効に用いることが望ましい。そのためには、発電プラント内で生成される、種々の精製されていないダーティーなガスでも利用できなければならず、電極などを阻害しない伝熱を行う通路を設けることにより達成される。

(作用)

ガス分離板と電極との間に形成される2種類の通路のうち、電極と隔離された通路は、その中で

供給燃料ガスを改質するが、電解質と通じる電極側に開いた通路とは出入口が別なため、電解質と通じる通路からの電解質の蒸気の侵入が防がれ、その結果、電極と隔離された通路内の触媒は、長時間にわたり活性を低下させることができない。

また、本発明によれば、分離板をはさんで位置するもう1つの電極と隔離された独立な通路が存在するが、その通路も前述した改質用通路とすることにより2つの異なる方向から供給ガスを導入できるため、一方向のみより、さらに効率良く電池の冷却が行える。すなわち従来に比べて分散してガスを電池内に導入できるので、入口部での急激な吸熱反応が緩和され、面内全体での発熱量と吸熱量のバランスを面内温度分布が均一になるよう制御することがより容易に行えることになる。

場合によっては、改質通路の代わりに改質ガス側とは反対極側のプロセスガスを流すことによりやはり異なる2つの方向からのプロセスガス導入が可能となり一方向のみの流れよりも電池内の温度分布均一の面からより効率の良い冷却を行うこ

とができる。

さらに1つの形式として、上記の電極と隔離された通路には、反応通路とも流体的に隔離されているため、冷却以外に電池の保溫、昇温といった熱制御においても、反応ガスと全く関係のない熱媒体や電極を劣化させるような熱媒体を流しても何ら問題は生じないので、システムを考えた場合、ヒーターによる温度制御に代わるより効率の高い熱の運用方法が得られる。

(実施例)

以下、本発明を実施例により詳細に説明する。

実施例1

本発明の一実施例を第1図～第2図により説明する。

本発明の流路構造の基本構成を第1図に示す。互いに直交する波形部材1a, 1bに分離板2が介在し、上記波形部材と密着させることにより、3a, 3b, 3c, 3dと4つの流路が構成されることになる。本発明では、そのうちの分離板2と上記波形部材1a, 1bにより囲まれた流路3a, 3dの

流路の両端部のすべての開口部100のみ閉塞されている。従って、例えば200の方向から入ってくる流体は流路3bのみを、201の方向から入ってくる流体は流路3cのみを流れることになる。次に上記の両端を閉塞された流路3dの入口部は、分離板2を隔てた、上記流路3aのうちの端部の流路4aの側面101aを開口し、さらに分離板2に、流路3dに通じる貫通穴102を設けることにより達成される。すなわち、例えば202の方向から流入する流体は、開口部101aに流入し、次に上記貫通穴102を通って流路3dを流れることになる。同様に、もう1つの両端を閉塞された流路3aに関しては、流路3dの端部の流路4bに開口部101bを設け、さらに分離板2に流路3aと通ずる貫通穴を設けることにより、例えば流体203の入口部を形成できる。また、それぞれの出口部についても残りのそれぞれのもう1方の端部側を先と同様の構造とすればよい。

なお流体の入口、出口部における流体201と202あるいは流体200と203との混合は、分離板2に

より完全に防止される。

第2図及び第3図は、第1図を補足するための断面図であるが、第1図における一組の流路構成体を複数個積層するため、新たに必要となるマニホールドを含めた構成となっている。

第2図は上記流体202の流れを示すもので、流体202のみが通る入口マニホールド5aを流れる流体202の分離板2の下側に位置する流路3c, 3dへは、マニホールド部材7により流入が防げる。流体202は上記分離板2の上側に位置する上記マニホールド部材7の開口部8を通って、上記端部波形流路4aの開口部101aに流入し、上記貫通孔102通り、上記両端を閉塞された流路3dを流れ、貫通孔102を通り端部流路4aから出口マニホールド5bに導かれる。

第3図は同様に流体201の流れを示すものである。流体201は流体201のみが流れる入口マニホールド6aを流れ、分離板2の下側の上記マニホールド部材7の開口部8通り、流路3cを流れ、出口マニホールド6bに導かれる。この場合も、

により形成される通路の両端部100は全て閉塞されている。また、上記セバレータ板2には、周囲4辺に5a～5pまで16個のマニホールド用の貫通穴が空けられている。また、その内側に多数の小孔102がやはり4辺に設けられている。次にマニホールドを構成するカソード側枠7a、アノード側枠7bが上記セバレータ板2と接着される。その際、セバレータ板2に設けたマニホールド用貫通穴5と枠7a, 7bに設けたマニホールド用貫通穴5とは一致する。枠7a, 7bのマニホールド用貫通穴5は、各辺において1つおきに内向きに開口部8が設けられている。しかもセバレータ板2に両枠が接着されたときに、枠7a, 7bではどちらか1方にのみ開口部8が配置されるようになっており、この開口部を通じてのみ、流路3とマニホールド間の連絡が可能となる。

第5図に、上記流路部構成要素と電極9a, 9bを上下両側に備えた電解質板10とが交互に積層された、複数個の電池を積層した積層電池の断面図を示す。なお、この積層電池の上下には、外

マニホールド6a, 6bに面したもう一方の流路4aとはマニホールド部材7によりその流入が防止されている。

以上、本発明により、分離板をはさんで互いに直交する形で設けられた波形形状の流路構成体及びその積層体において、その大きさや外観上の形状を殆ど変えることなく、最もコンパクトな形で、最大4種類の流体を、また、同一辺には最大2種類までの流体を4辺の任意の辺からそれぞれ独立して流すことができる。

実施例2

次に本発明の流路構成体を応用した具体的な機器についての実施例として内部改質を伴う溶融炭酸塩型燃料電池を例に説明する。

第4図は、本発明による溶融炭酸塩型燃料電池の流路部構成要素を示すものである。アノードガス204とカソードガス205を分離し混合を防ぐセバレータ板2にカソード側流路を形成する波板1a、アノード側流路を形成する波板1bが密着して接する。その際、上記波板1a, 1bとセバレータ板

部から電池内にガスを供給したり、あるいは外部へ排ガスとして排出するためのガスヘッダ部11, 12が備わっている。

説明の都合上、流路構成体Aは、第4図のマニホールド5f(5h)～5φ(5m)間の切断図とし、同じくBは5g(5e)～5n(5p)間の断面図を示すものとする。

流路構成体A側に示すように、アノードガス204は、アノードガス供給口19から、アノード入口ヘッダー14に入り、その後、該ヘッダーと連絡している入口マニホールド5f, 5h内を流れ、入口側の開口部8を通り、電極9bと接する第1の流体通路である流路3bを流れる。電極9b内で電気化学反応を行い、出口側開口部8を通り、排ガス207となって、出口マニホールド5φ, 5mを通り、アノード出口ヘッダー13に集められた後にアノード排気口17を通って系外に排出される。

同様に、カソードガス205に関してても、図には示されていないが、ガスヘッダー部11あるいは12に位置するカソード入口ヘッダーから第4図の入

口マニホールド 5 b, 5 d を通って、アノードガスと直角方向の第 1 の流体通路である流路 3 c を流れ、電極 9 a 内でカソード電極反応を生じ、出口開口部 8 を通って、出口マニホールド 5 k, 5 i を通って、図には示されていないが、やはりガスヘッダー部 11, 12 に設けられているカソード出口ヘッダーに集められ、系外へ排出される。

従来の電池の場合、波形シート材 1 によってアノード、カソード側それぞれに形成される、もう 1 つの流路 3 a, 3 d については、それぞれ隣り合う流路 3 b, 3 c を流れるガスと同一のガスを流す他なかった。本発明の電池では、例えば第 2 の流体通路である流路 3 a について言えば入口マニホールド 5 e, 5 g、出口マニホールド 5 n, 5 p は他のマニホールドと独立しており、また、該マニホールドと連絡する出入口ヘッダー 16, 15 も独立して設けられている。さらに、流路 3 a の電極 9 b とも波形シート材 1 により隔離されている。従って、特に電気化学反応に関係なく、ガス 206 を独立に流すことができる。これはカソード側の第 2

の流体通路である流路 3 d についても同様である。

本実施例では、電池本体内で原燃料であるメタンを改質して電気化学反応を生じさせる、いわゆる内部改質型燃料電池に適用している。第 6 図に本実施例の電池本体の断面図を示す。改質前のメタンを含む原燃料ガス 208 は、ガス供給口 18 からアノード入口ヘッダー 16 に集められ、ここから、複数の入口マニホールド 5 b を通って、各セルへ分配されることになる。すなわち入口マニホールド 5 b から、マニホールド枠に設けた開口部 8 を通り、セバレータ板 2 に設けられた開口部 102 を通で流路 3 a に導入される。流路 3 a 内には、改質触媒 30 が配置され、流路 3 a 内で水素リッチなガスに改質され、開口部 102, 開口部 8 を通り出口マニホールド 5 b へ導かれる。流路 3 a は他の流路及び電極 9 a, 9 b と隔離されているために、電解質板 10 から電極 9 a, 9 b を通して流路内 3 b, 3 c に発生する電解質蒸気の流路 3 a への侵入が防止でき、改質触媒は電解質蒸気の凝縮による付着によって生じる活性低下をまぬがれることができ、

電池の長寿命化が図れることになる。なお改質後のガス 204 は、出口マニホールド 5 b を通り、一旦、ガスヘッダー 15 に入り、さらに、ガスヘッダー 15 と流体的に連絡している別のマニホールド 5 a を通って、今度は、流路 3 a と隣合う流路 3 b に開口部 8 を通って導入される。流路 3 b は電極 9 b と接しており、電気化学反応を生じながら、隣接する改質反応を行う流路 3 a 内のガス流れとは逆方向に進む。流路 3 b の出口に達したガスは、開口部 8 を通って出口マニホールド 5 a を通り、出口アノードヘッダー 14 に集められ、排気口 17 を通り排ガス 207 となって電池から排出される。なお、流路 3 b には流路 3 a を出た改質ガスのメタン改質率をさらに高めるために、従来と同様に改質触媒 30 を配置してもよい。

また、本実施例では、改質反応を生じる流路 3 a と電気化学反応を生じる流路 3 b のガス流れが互いに逆方向となっている。これにより従来に比べて、電池面内の温度分布をより均一にすることが可能となる。その効果を第 7 図を用いて説明

する。第 7 図には本実施例と従来例におけるアノードガス流れ方向の温度分布を示す。従来例では原燃料及び改質ガスの流れ方向が同じである。一般にガス入口温度はガスの顯熱を利用して電池を冷却するため、電池温度よりも低い。このため、ガスの入口部付近の電池温度は面内で最も低い温度となりやすく下流側へ行くほどガス温度も上昇するので顯熱による冷却効果も小さくなり、電池温度が高くなる。従来の場合、原燃料が改質される際の吸熱現象がさらに加わるため入口付近の温度はますます低下することになり、最悪の場合、溶融温度である 490°C 前後まで下がることも考えられる。逆に下流側では、改質反応が終了しているために大きな吸熱効果は得られず、温度が高くなり、面内の温度分布の不均一が大きくなることは避けられない。それに比べて本実施例では、原燃料と改質ガスの入口が互いに反対側に設けられており、流れ方向は対向する。このため改質後の反応ガスが流れる原燃料通路と隣接する通路において比較的高温となる出口付近が熱源となり、原

燃料入口付近の温度低下は避けられ、面内温度分布をより均一にすることができる。

従来、第7図のようにアノードガス(改質ガス)とカソードガス(酸化剤)が直交して流れる場合、第8図に示すように両者の下流部付近50の温度が最も高くなる場合が多い。そこで、本実施例よりもさらに面内温度分布を均一にする他の実施例を第8図に示す。第8図では原燃料は辺61に対しても均一に流入するのではなく、高温域60に流れるガス流量を多くし、改質量を増やし、高温域60における吸熱量を増やすことにより、高温域を局的に冷却する方法を示している。なお原燃料ガスの面内流量分布の制御は、第6図の開口部102の開口面積を変えることにより行うことができる。

実施例3

他の実施例は、第6図に示す電極と隔離された分離板をはさんで反対側に位置するもう1つの流路3d内にも改質触媒を配置し、第9図に示すように2つの方向から分散させて原燃料ガスを導入することもできる。流路3a及び流路3dで改質

されたガスは、出口マニホールドを通って、一旦、電池内のガスヘッダーに導入され、その後、電気化学反応を行う通路3bの入口に通ずるマニホールドへ導かれる。一般に改質触媒を設けると流路面積が減少し圧損が増加する。また先の実施例のように一部の流路に集中してガスを流しても圧損が増加し、補助動力が増える。2方向から別々の流路に分散することにより、この欠点が補える。さらにより大きな効果としては、流路3aと3dは互いに直交するため、そして、それぞれの流路を流れる流量分布が先に述べた開口面積を変えることにより独立に制御できるため、2組の1次元流量分布を組合わせることにより2次元の流量分布制御が可能であり、このことはより精度よく面内の吸熱分布が制御でき、ひいては、面内温度分布をより均一化することが可能となる。

電極と隔離された2つの通路のうち第6図の流路3dに、カソード側のプロセスガスを流し、カソードプロセスガスが1つのセル内で第10図に示すように対向して流すことでも可能であり、同図に

示すように、ガスを分散して導入できるのでプロセスガス入口温度を低くしても入口近傍の温度低下を抑えることができるので最高温度が低くなり、温度分布均一の効果がある。

実施例4

今まで述べてきた実施例においては、改質反応通路を出るメタンの改質率が温度、圧力、入口ガス組成により定まる平衡値よりも、大きくなることは理論的に不可能である。特に電池圧力が高くなると平衡改質率は低下する傾向にある。これによりさらに改質率を上げるためにには、前述の如く、電気化学反応通路3bにも触媒を導入する必要があった。しかし、通路3b内の触媒は電解質が付着しやすい環境におかれているため、劣化しやすく寿命の問題が残る。もう1つの方法はリサイクルを行い、電気化学反応後の水分を多量に含む排ガスを原燃料ガスと混合させることである。これによりスチーム/カーボン比を高くすることができます、その結果、メタンの平衡改質率も高くなる。しかしながらリサイクルする反応後の排ガス中に

は電解質蒸気が含まれており、このため徐々に流路3aに置かれた触媒が劣化することになる。

第11図に、触媒の寿命を出来るだけ長く延ばすことを目的としたリサイクル方式の実施例を示す。通路3aで改質された平衡ガスは、一旦出口マニホールドを通って電池内のガスヘッダー41に入り、そこで、電池から排出され、再循環された反応ガス207と混合され、もう1つの電極と隔離された通路3dに通ずるマニホールドを通り。通路3dには改質触媒が配置されており、再循環ガス207に含まれる水分の影響により、通路3dを出た改質ガス中に含まれるメタン濃度の平衡値は通路3a出口よりもさらに小さくなる方向に進み、通路3d出口における改質率はさらに高くなる。この改質ガスは通路3d出口と通ずるマニホールドを通り、一旦、ガスヘッダー42に導かれ、そこから反応通路3bに通ずるマニホールドを通って、第6図の電極9bに導かれる。このように改質反応を2段階に分けて行う本実施例では、少なくとも通路3aの改質触媒はリサイクルの影響を受け

ないため、再循環ガス中に含まれる電解質蒸気にによる触媒活性低下が避けられる。メタン改質の大部分はこの通路3a内で行われ、再循環ガスが混在する通路3dでの改質割合は比較的小さく、従って通路3d内の触媒の負担は通路3a内の触媒に比して比較的軽い。また2つの通路に触媒を配置できるので電池内の触媒量も増やすことができる。以上のことから電解質の触媒に与える影響は小さくなり、触媒全体としての寿命は延びることになる。従来技術では再循環系にガス中の電解質を除去する装置が不可欠となっていたが、本実施例では、そのような装置がなくても、触媒の寿命を延ばすことが可能となる。

実施例5

上記に示した燃料の改質や電池の冷却以外にも電池には非発電時における昇温、降温、あるいは保温といった熱制御もプラント運転上必要となる。本発明による他の実施例として電池本体の熱制御システムの1例を第12図に示す。電池本体40は、先述のように4つの独立した通路3a、3b、3c、

3dを有している。このうち、電極と連絡する通路3b、3cには、それぞれ改質ガス、カソードプロセスガスが流れる。また、原燃料を改質するための通路は先述のように電極と隔離された通路3aが用いられる。

残る通路3dは電極と隔離された通路であり、熱制御の目的に応じて、種々のガスが流れることになる。先ず、冷却用にはカソードプロセスガスライン302の分歧点50からプロセスガスの一部を分岐し、分歧ライン303を通り流量調整弁52により制御されたプロセスガスが通路3dに導入し、通路3cを対向して流れるプロセスガスと合わせて先述した電池冷却を行う。あるいは、別な冷却方法の選択として、これも先述したが、改質反応を利用した吸熱作用による電池の冷却がある。この場合は通路3dにも改質触媒を配置しておく必要がある。原燃料ライン301の分歧点56から分歧された原燃料の1部が分歧ライン306を通り、流量調整弁54により流量制御され通路3dに導かれ、改質後、電池外へ排出される。あるいは改質ガス

の1部、あるいは全部を分歧ライン305に通し、流量調整バルブ51、57により流量制御を行った後に電気化学反応を行わせるために通路3bに導入することもできる。このように冷却に関して2種類の冷却方法を選択することができることの利点として、電池の負荷、供給ガス、流量、ガス温度などの種々の運転条件において、よりフレキシブルに最適な冷却が行えることである。なお、通路

3d内の改質触媒は、カソードプロセスガス導入時には酸化されるため、原燃料ガスを流す場合には、水素を通ガスして還元する必要があることをことわっておく。また、冷却媒体として、原燃料ガスやカソードプロセスガス以外の媒体を独立して流すことも可能である。この場合は前記ガスよりも熱容量や熱伝導度の大きい媒体を選び、冷却ガス量が減らせるため、補助動力が少なくて済みシステムの効率が向上する。

次に、非発電時における電池の昇温、保温といった加熱操作も本システムで行うことができる。すなわち、高温の熱媒体が流れるライン300から、

流量調整弁53により流量制御された熱媒体を必要に応じて、通路3dに流すことにより電池に熱の供給を行うことができる。最も得られやすい熱媒体として、燃焼ガスなどが挙げられる。燃焼ガス中には、電極の活性を低下させる有害物質SOxやNOxなどが含まれているが、通路3dは電極と隔離された通路となっているため、このような電極に悪影響を及ぼすガスでも熱媒体として用いられるため、加熱用ヒーターの代用も考えられ、加熱用媒体の選択幅が拡がること、浄化装置も不要になることと合わせて、システムの構成が簡単となり効率の向上及びコスト低減にもつながる。

〔発明の効果〕

本発明によれば、燃料改質を行う通路への電解質の侵入が防げるため、改質触媒の寿命を向上する効果が得られる。

また、供給ガスを異なる方向から分散させて導入することや、常時反応ガス以外のガスの導入も可能なため、面内温度分布の均一化が図れ、電池の信頼性、寿命、性能などが向上する。

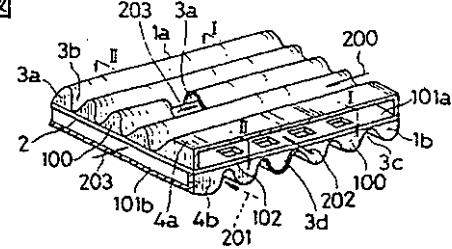
4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の一実施例の流路構造の斜視図、第2、第3図は第1図にマニホールド部を加えたI-I及びII-II縦断面図、第4図は組立斜視図、第5図(a)、(b)、第6図(a)、(b)はその縦断面図、第7図(a)～(c)は従来例と本発明の他の実施例の比較説明図、第8図～第9図は本発明の他の実施例におけるガスフロー概略図、第10図(a)～(c)は従来例と本発明の他の実施例の比較説明図、第11図は本発明の他の実施例のガスフロー概略図、第12図は本発明の他の実施例の電池周囲を含むガスフローシステム概略図である。

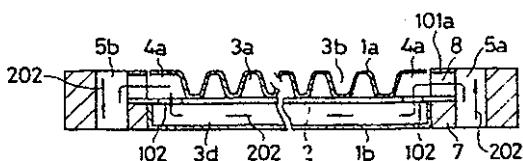
1…波形シート部材、2…ガス分離板（セバレータ板）、3…流路、5、6…マニホールド、8…マニホールド開口部、9…電極、10…電解質板、30…改質触媒、100…端部閉塞部、102…流路開口部、204…アノードガス、205…カソードガス。

(本頁以下余白)

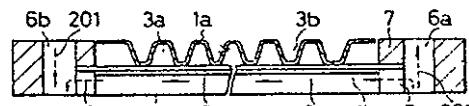
第1図



第2図

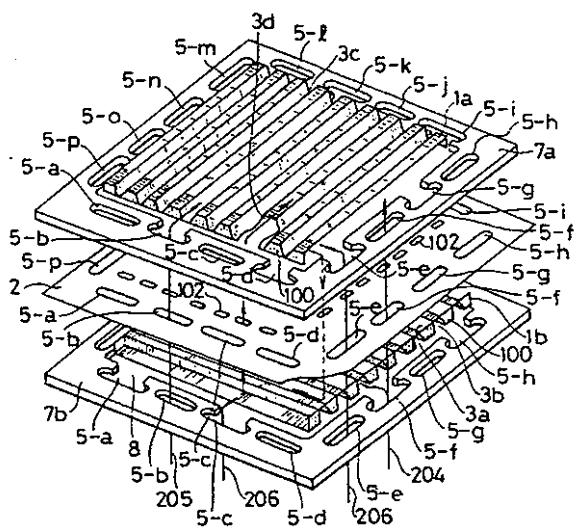


第3図



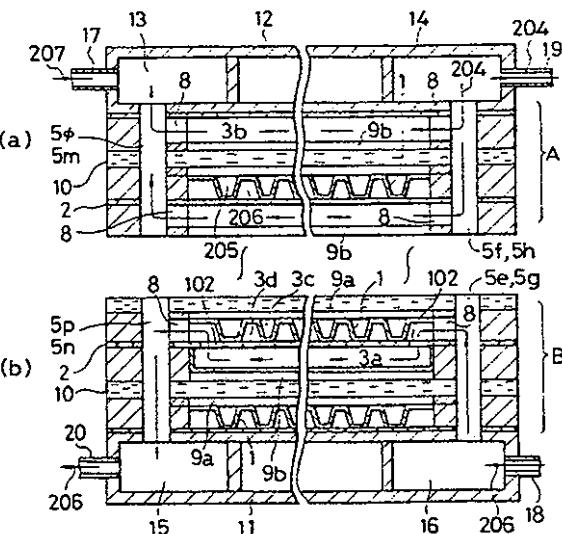
1…波形シート部材
2…ガス分離板
3a…改質反応を行なう流路（第2の流体通路）
3b…アノードガス流路（第1の流体通路）
3c…カソードガス流路（第1の流体通路）
3d…改質反応を行なう流路（第2の流体通路）
5,6…マニホールド
8…マニホールド開口部
100…端部閉塞部
102…流路開口部

第4図



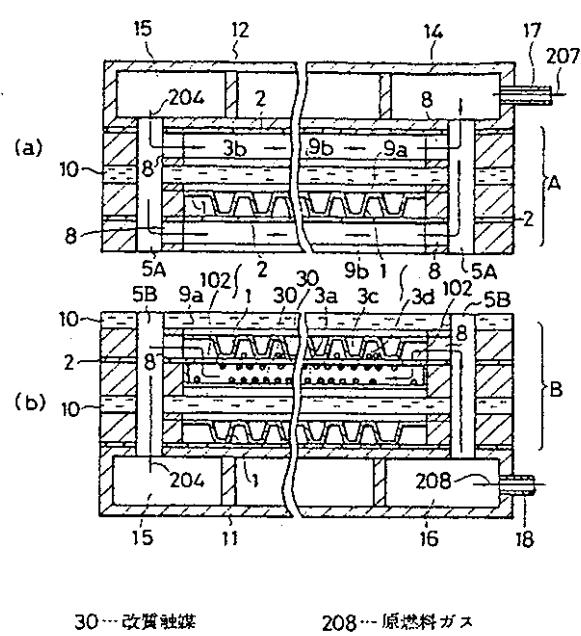
7a…カソード側枠
204…アノードガス
206…任意のガス
7b…アノード側枠
205…カソードガス

第5図

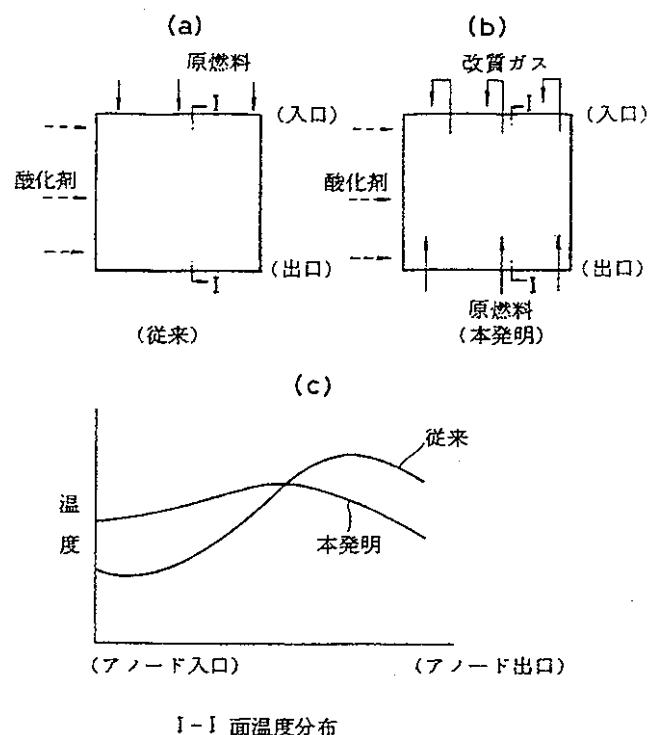


9a…カソード
9b…アノード
10…電解質板

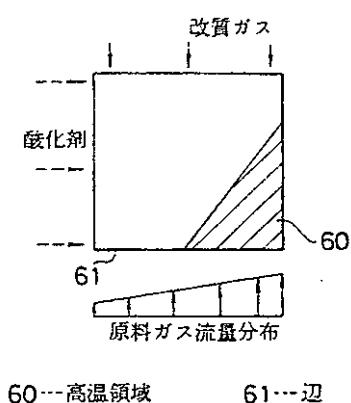
第6図



第7図



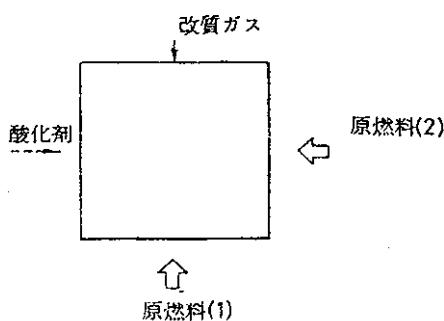
第8図



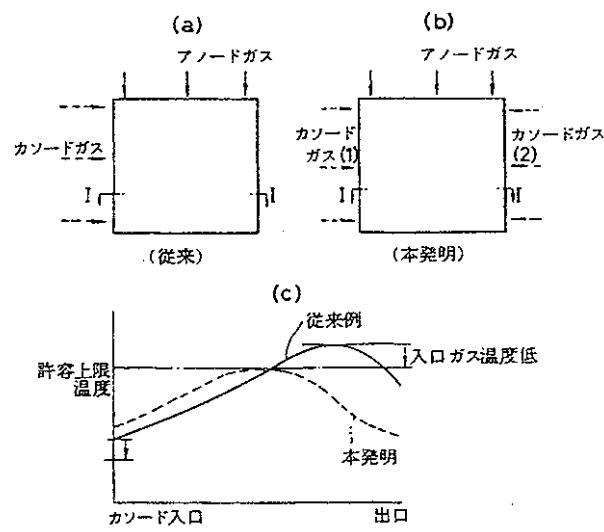
60---高温領域

61---辺

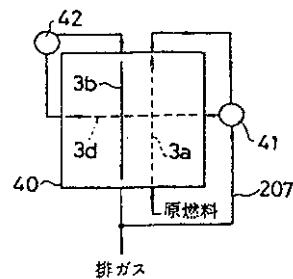
第9図



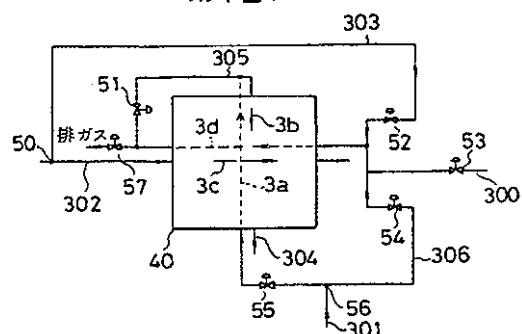
第10図



第11図



第12図



40—電池本体

42---ガスヘッダー

207---再循環ガス

301---燃料 ライン

41---ガスヘッダー

50-57---流量調節弁

300---熱制御用ライン